

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-250482

(P2004-250482A)

(43) 公開日 平成16年9月9日(2004.9.9)

(51) Int.Cl.⁷

C08L 63/00

C08K 3/00

F 1

C08L 63/00

C08K 3/00

テーマコード(参考)

4J002

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 20 頁)

(21) 出願番号 特願2003-39701 (P2003-39701)

(22) 出願日 平成15年2月18日(2003.2.18)

(特許庁注: 以下のものは登録商標)
チラノ繊維

(71) 出願人 000006622

株式会社安川電機

福岡県北九州市八幡西区黒崎城石2番1号

(72) 発明者 浜尾 聡和

福岡県北九州市八幡西区黒崎城石2番1号

株式会社安川電機内

Fターム(参考) 4J002 CD041 CD051 DA026 DA036 DA066

DC006 DE136 DE146 DE186 DF016

DJ006 DJ016 DJ036 DJ056 DK006

DL006 FA036 FD016 GQ00

(54) 【発明の名称】 エポキシ樹脂組成物およびそれを用いた電気機器

(57) 【要約】

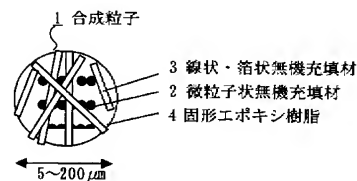
【課題】 充填率が高く、高強度、高靱性・高熱伝導率のエポキシ樹脂組成物、およびそれを用いた電気機器を得る。

【解決手段】 本発明のエポキシ樹脂組成物は、無機充填材と固形エポキシ樹脂4とからなり、粒子径が $5\mu\text{m}$ ～ 10mm 、好ましくは $10\mu\text{m}$ ～ $200\mu\text{m}$ の合成粒子1を、エポキシ樹脂に充填したものである。

また、固形エポキシ樹脂は、未硬化または半硬化の状態のものを、固形エポキシ樹脂の融解温度以上の温度にて硬化したものである。

また、無機充填材は、 $5\mu\text{m}$ 以下の粒子径からなる微粒子状無機充填材2、または線状や箔状の無機充填材3からなり、 $1\mu\text{m}$ 以上の長さからなる線状またはそれを折り曲げたもの、または $10\mu\text{m}$ 以下の厚さからなる箔状またはそれを折りたたんだものでもよい。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

無機充填材と固形エポキシ樹脂とからなり、粒子径が $5\ \mu\text{m} \sim 10\ \text{mm}$ 、好ましくは $10\ \mu\text{m} \sim 200\ \mu\text{m}$ の合成粒子を、エポキシ樹脂に充填してなることを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項 2】

前記固形エポキシ樹脂は、未硬化または半硬化の状態のものを、前記固形エポキシ樹脂の融解温度以下の温度にて金型やワーク等に注入し、前記固形エポキシ樹脂の融解温度以上の温度にて硬化させたものであることを特徴とする請求項 1 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 3】

前記無機充填材は、 $1\ \text{nm}$ 以上、 $2\ \mu\text{m}$ 以下の粒子径からなる微粒子状無機充填材、および／または、 $1\ \mu\text{m}$ 以上の長さからなる線状またはそれを折り曲げた形状のもの、および／または、 $10\ \mu\text{m}$ 以下の厚さからなる箔状またはそれを折りたたんだ形状のもの、であることを特徴とする請求項 1 または 2 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 4】

前記無機充填材は、アルミナ、ホウ酸アルミニウム、シリカ、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、チタン酸カリウム、ホウ酸マグネシウム、カーボン、グラファイト、チラノ繊維、アラミド繊維、マイカ、モンモリロナイト、酸化チタン、ガラス、各種金属、各種熱可塑性プラスチック、各種ゴムまたはそれらの混合物の少なくとも 1 つからなることを特徴とする請求項 1 から 3 のいずれか 1 項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 5】

請求項 1 または 2 記載のエポキシ樹脂組成物において、無機充填材を形状記憶合金としたことを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項 6】

前記形状記憶合金の変態温度以上かつ前記固形エポキシ樹脂の融解温度以上の温度にて硬化したことを特徴とする請求項 5 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 7】

前記形状記憶合金は $100\ \mu\text{m}$ 以上の長さからなる線状またはそれを折り曲げた形状、および／または前記形状記憶合金は $100\ \mu\text{m}$ 以下の厚さからなる箔状またはそれを折りたたんだ形状であることを特徴とする請求項 5 または 6 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 8】

前記形状記憶合金は、ニッケル／チタン合金、ニッケル／チタン／銅合金、ニッケル／チタン／コバルト合金、ニッケル／チタン／鉄合金、またはそれらの混合物の少なくとも 1 つからなることを特徴とする請求項 5 から 7 のいずれか 1 項に記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 9】

請求項 1 から 4 記載のエポキシ樹脂組成物において、無機粒子を充填してなることを特徴とするエポキシ樹脂組成物。

【請求項 10】

前記無機粒子は、アルミナ、シリカ、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、チタン酸カリウム、ホウ酸マグネシウム、カーボン、モンモリロナイト、酸化チタン、ガラス、各種金属またはそれらの混合物の少なくとも 1 つからなることを特徴とする請求項 9 記載のエポキシ樹脂組成物。

【請求項 11】

請求項 1 から 10 記載のエポキシ樹脂組成物をモールド材に用いたコイル、ブッシングまたは碍子などの電気機器。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、電気機器のモールド樹脂等に使用されるエポキシ樹脂組成物およびそれを用い

10

20

30

40

50

た電気機器に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来の無機充填材を充填したエポキシ樹脂組成物は、その強度・弾性率・靱性・熱伝導率などの特性を高めたり、硬化発熱を放散させたりするため、液状または加熱溶融した未硬化エポキシ樹脂に、粒径が $1 \sim 200 \mu\text{m}$ の粒子状、線状、箔状の無機充填材をそれぞれ単独または組み合わせて混合して成形・硬化させていた（例えば、特許文献1および特許文献2参照）。

【0003】

【特許文献1】特開平11-092627

10

【特許文献2】特開平09-077957

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、従来のエポキシ樹脂組成物は、液状または加熱溶融した未硬化エポキシ樹脂に粒径が $5 \mu\text{m}$ 以上の無機粒子を充填した場合は、粘度の上昇が小さいため高充填可能であるが、充填率に対して特性の向上が小さいという問題がある。一方、充填率に対して特性の向上が大きな無機充填材、つまり比表面積が大きいサブミクロン微粒子や箔状や線状の無機充填材を充填した場合、粘度上昇がきわめて大きく高充填ができないため、特性を向上させることができないという問題がある。

また、 $5 \mu\text{m}$ 以上の無機粒子を充填した場合、加熱硬化時の温度上昇で樹脂粘度が低下し、厚肉部では比重が高く比表面積が小さい無機粒子が沈降していた。一方、比表面積が大きな無機充填材（微粒子や線状、箔状）を併用して沈降を防止すると、粘度が高くなり成形作業性が悪く、空隙が発生するなどの問題がある。

20

そこで、本発明はこのような問題点に鑑みてなされたものであり、無機充填材の充填による粘度上昇を抑制することで充填率を高め、高強度、高靱性・高熱伝導率のエポキシ樹脂組成物、およびそれを用いた電気機器を提供することと、成形時は粘度が低い、加熱硬化時は粘度を上昇させることで、成形作業性は良好で無機粒子が沈降しないエポキシ樹脂組成物、およびそれを用いた電気機器を提供することを目的とする。

【0005】

【課題を解決するための手段】

30

上記問題を解決するため、本発明は次のように構成したものである。

（1）無機充填材と固形エポキシ樹脂とからなり、粒子径が $5 \mu\text{m} \sim 10 \text{mm}$ 、好ましくは $10 \mu\text{m} \sim 200 \mu\text{m}$ の合成粒子を、エポキシ樹脂に充填したエポキシ樹脂組成物である。

（2）前記固形エポキシ樹脂は、未硬化または半硬化の状態のものを、前記固形エポキシ樹脂の融解温度以下の温度にて金型やワーク等に注入し、前記固形エポキシ樹脂の融解温度以上の温度にて硬化させたエポキシ樹脂組成物である。

（3）前記無機充填材は、 1nm 以上、 $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子径からなる微粒子状無機充填材、および／または、 $1 \mu\text{m}$ 以上の長さからなる線状またはそれを折り曲げた形状のもの、および／または、 $10 \mu\text{m}$ 以下の厚さからなる箔状またはそれを折りたたんだ形状のものとしたエポキシ樹脂組成物である。

40

（4）前記無機充填材は、アルミナ、ホウ酸アルミニウム、シリカ、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、チタン酸カリウム、ホウ酸マグネシウム、カーボン、グラファイト、チラノ繊維、アラミド繊維、マイカ、モンモリロナイト、酸化チタン、ガラス、各種金属、各種熱可塑性プラスチック、各種ゴムまたはそれらの混合物の少なくとも1つからなるエポキシ樹脂組成物である。

以上の構成により、充填率に対する特性の向上が大きい。つまり比表面積が大きな無機充填材を液状エポキシ樹脂に充填する際に、固形エポキシ樹脂にて比表面積を小さくすることで、粘度上昇を抑えて無機充填材を高充填することができる。よって、これらの無機充填材を充填しても硬化物内の空隙率を低下させることができるとともに、硬化物の強度を

50

大幅に高めることができる。

(5) 前記無機充填材は形状記憶合金からなり、前記形状記憶合金の変態温度以上かつ前記固形エポキシ樹脂の融解温度以上の温度にて硬化したエポキシ樹脂組成物である。

(6) 前記形状記憶合金は $100\mu\text{m}$ 以上の長さからなる線状またはそれを折り曲げた形状、および／または前記形状記憶合金は $100\mu\text{m}$ 以下の厚さからなる箔状またはそれを折りたたんだ形状のエポキシ樹脂組成物である。

(7) 前記形状記憶合金は、ニッケル／チタン合金、ニッケル／チタン／銅合金、ニッケル／チタン／コバルト合金、ニッケル／チタン／鉄合金、またはそれらの混合物の少なくとも1つからなるエポキシ樹脂組成物である。

以上の構成により、充填率に対する熱伝導率の向上が大きい、つまり比表面積が大きな無機充填材を液状エポキシ樹脂に充填する際に、固形エポキシ樹脂にて比表面積を小さくすることができ、粘度上昇を抑えて無機充填材を高充填し、また、無機充填材が相互に接触するため、硬化物の熱伝導率を大幅に高めることができる。

(8) 上記(1)から(4)に記載のエポキシ樹脂組成物に、無機粒子を充填してなるものであり、この無機粒子は、アルミナ、シリカ、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、チタン酸カリウム、ホウ酸マグネシウム、カーボン、モンモリロナイト、酸化チタン、ガラス、各種金属またはそれらの混合物の少なくとも1つからなるエポキシ樹脂組成物である。

以上の構成により、成形作業性が良く、厚肉部においても粒子の沈降を防止することができ均一に分散した良好な厚肉の硬化物を得ることができる。

(9) 上記(1)から(8)に記載のエポキシ樹脂組成物をモールド材としてコイル、ブッシングまたは碍子など用いた電気機器である。

以上の構成により、高性能な電気機器を得ることができる。

【0006】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態を図に基づいて説明する。

(第1の実施形態)

図1は、本発明の未硬化液状エポキシ樹脂と混合させる合成粒子の構造を示す断面の模式図である。図1において、1は合成粒子、2は無機充填材の一つである粒子径が $2\mu\text{m}$ 以下の微粒子状無機充填材、3は線状や箔状の無機充填材、4は固形エポキシ樹脂である。合成粒子1は、微粒子状無機充填材2と線状や箔状の無機充填材3および固形エポキシ樹脂4からなる。

合成粒子1の径は、粘度上昇が小さい $5\mu\text{m}$ 以上であり、電気機器のコイルモールド樹脂として用いるためには $200\mu\text{m}$ 以下が好ましく、ブッシングなどの厚肉成形品を得る場合は 10mm 程度の大きさとしても良い。

合成粒子1は、粒子径が $5\mu\text{m}$ 以上と粗大であり比表面積が小さいため、固形エポキシ樹脂4が硬化物のときや、未硬化または半硬化でも融解温度以下の温度に保持した液状エポキシ樹脂に充填したとき、つまり固形エポキシ樹脂4が融解していないときの粘度上昇は、従来の粗大な無機粒子を充填した場合と同様に低く、高充填可能となる。固形エポキシ樹脂4が未硬化や半硬化場合、このエポキシ樹脂組成物の成形時の温度は固形エポキシ樹脂4の融解温度以下とすることで低粘度のまま保ち、硬化温度は合成粒子の固形エポキシ樹脂4の融解温度以上として融解させ、合成粒子1周囲の液状エポキシ樹脂と均一化するとともに、無機充填材をエポキシ樹脂組成物内に分散させることができる。

合成粒子1の製造方法について述べる。

▲1▼ 固形エポキシ樹脂4が硬化物の場合、固形エポキシ樹脂4の液状未硬化原料を、微粒子状無機充填材2や線状や箔状の無機充填材3を加え、ニーダにて強力なせん断を与えて混合し、加熱した平板上に薄く広げて真空脱泡し、加熱硬化後に粉碎・分級することで作製した。

▲2▼ 固形エポキシ樹脂4が未硬化または半硬化の場合は、固形エポキシ樹脂4を加熱溶融させ、微粒子状無機充填材2や線状や箔状の無機充填材3を加え、ニーダにて強力な

10

20

30

40

50

せん断を与えて混合し、固形エポキシ樹脂 4 の融解温度以上に加熱した平板上に薄く広げて真空脱泡し、冷却固化後に粉碎・分級することで作製した。

次に、組成と粘度を表 1 に示す。本実施例のエポキシ樹脂組成物は、コイルモールド（に向けた粒度分布である）を想定し、合成粒子 1 の粒度分布を $5 \sim 200 \mu\text{m}$ 、中心粒径を $30 \mu\text{m}$ とした。比較例として、従来のエポキシ樹脂組成物の組成も加えた。

エポキシ樹脂組成物に用いた材料は以下のとおりである。

（イ）無機充填材：微粒子状無機充填材 2 としてアルミナ（破砕形状、中心粒径 $1 \mu\text{m}$ ）を、線状や箔状の無機充填材 3 としてガラス繊維（直径 $10 \mu\text{m}$ 、長さ $50 \mu\text{m}$ ）およびマイカフレーク（厚さ $1 \mu\text{m}$ 、中心粒径 $50 \mu\text{m}$ ）を用いた。

（ロ）固形エポキシ樹脂：ビスフェノール A 型（エポキシ当量 450、融解温度 70°C ） 10

（ハ）液状エポキシ樹脂：ビスフェノール A 型（エポキシ当量 190）

（ニ）硬化剤：3 フッ化ホウ素モノエチルアミン

表 1 より、実施例 1 は、微粒子状アルミナを固形エポキシ樹脂にて合成粒子 1 として充填したものであるが、同じアルミナをそのまま充填した比較例 1 の 2 倍の量を高充填しても粘度は変わらなかった。実施例 2 は、ガラス繊維を固形エポキシ樹脂にて合成粒子 1 として充填したものであるが、同じガラス繊維をそのまま充填した比較例 2 の 3 倍高充填しても粘度は低かった。実施例 3 はマイカフレークを固形エポキシ樹脂にて合成粒子 1 として充填したものであるが、同じマイカをそのまま充填した比較例 3 の 3 倍高充填しても粘度は低かった。また、実施例 4 はこれら 3 種類の無機充填材を混合して固形エポキシ樹脂にて合成粒子 1 として充填したものであるが、粘度上昇が特に大きなガラス繊維やマイカを 20

そのまま充填した比較例 2，3 よりも粘度は低かった。以上の結果より、本発明により粘度上昇の大きな無機充填材を、粘度上昇を抑えて充填することが可能となり、つまり、粘度上昇の大きな無機充填材を高充填可能にすることができた。

【0007】

【表 1】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と粘度

	実施例				比較例		
	1	2	3	4	1	2	3
アルミナ	50	—	—	20	25	—	—
ガラス繊維	—	30	—	10	—	10	—
マイカ	—	—	30	10	—	—	10
固形エポキシ*	15	20	20	20	—	—	—
液状エポキシ	32	47	47	37	72	87	87
硬化剤	3	3	3	3	3	3	3
粘度 (20°C) [Pa·sec]	200	100	130	180	200	800	1500

* 固形エポキシ樹脂と 3 フッ化ホウ素モノエチルアミンを 100/3（重量比）で混合したもの

【0008】

（第 2 の実施形態）

本実施形態は、補強効果の高い高アスペクト比の無機充填材、つまり比表面積の大きな無機充填材を、粘度上昇を抑えることで高充填可能にしたものである。

第 1 の実施形態と異なる点は、無機充填材の一部だけであり、他の条件は第 1 の実施形態 50

と同じである。

無機充填材：線状や箔状の無機充填材 3 としてガラス繊維に代えてホウ酸アルミニウムウイスカ（直径 0.5 μm 、長さ 20 μm ）を用いた。

表 2 より、ホウ酸アルミニウムウイスカを固形エポキシ樹脂にて合成粒子として充填した実施例 5 は、同じホウ酸アルミニウムをそのまま充填した比較例 1 の 3 倍高充填しても粘度は低く、曲げ強度は約 2 倍高かった。マイカフレークを固形エポキシ樹脂にて合成粒子として充填した実施例 6 は、同じマイカをそのまま充填した比較例 5 の 3 倍高充填しても粘度は低く、曲げ強度は約 2 倍高かった。また、実施例 5, 6 の固形エポキシ樹脂の一部をアルミナ微粒子にて置き換えた実施例 7, 8 は、実施例 5, 6 よりも粘度は若干上昇したが曲げ強度は約 30 % 高くなった。また、これら 3 種類の無機充填材を混合して固形エ

10

ポキシ樹脂 4 にて合成粒子として充填した実施例 9 は、ホウ酸アルミニウムやマイカをそのまま充填した比較例 4, 5 よりも粘度は低く、曲げ強度は 3 倍以上高かった。

【0009】

【表 2】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と粘度と曲げ強度の関係

	実施例					比較例	
	5	6	7	8	9	4	5
ホウ酸アルミ	30	—	30	—	20	10	—
マイカ	—	30	—	30	10	—	10
アルミナ	—	—	10	10	10	—	—
固形エポキシ*	20	20	10	10	20	—	—
液状エポキシ	47	47	47	47	37	87	87
硬化剤	3	3	3	3	3	3	3
粘度(20℃) [Pa·sec]	100	130	110	140	180	800	1500
曲げ強度[MPa]	150	130	180	160	300	80	70

20

30

* 固形エポキシ樹脂と37%硬化剤を100/3（重量比）で混合したもの

【0010】

（第 3 の実施形態）

次に、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気機器のコイルモールドとして使用した例について説明する。本試料の形状を図 2 に示す。図 2 は、注形されたコイルを示す図で、（a）は平面図、（b）は側断面図である。図において、5 はボビン、6 はコイル、7 はエ

40

ポキシ樹脂組成物である。
本試料は、直径 30 mm、厚さ 5 mm のフェノール樹脂製のボビン 5 に、 $\phi 1\text{ mm}$ の 1 種ポリエステルエナメル線を外径 40 mm となるよう 2 線を平行に整列巻きしたコイル 6 を、幅 45 mm、高さ 45 mm、厚さ 7 mm の内容積を持つ図示しない金型に取り付け、表 3 に示すエポキシ樹脂組成物 7 にて真空成形し、150℃、8 hr にて硬化後に離型したものである。エポキシ樹脂組成物の材料構成は、表 1 に示した実施例 1～4、比較例 1～3 と同じものとした。

外観やコイル部分の断面を観察し、モールド樹脂部分やコイル素線間の気泡や未充填部の有無と、モールド樹脂部分の空隙率と、交流 60 Hz での部分放電開始電圧にて評価した。

50

表 3 に評価結果を示す。観察の結果、本発明の実施例 10～13 のエポキシ樹脂組成物にて注形したコイルのモールドには、気泡や未充填部が見られず、部分放電開始電圧が高かったのに対し、比表面積の大きな無機充填材をそのまま充填した比較例 6～8 は気泡や未充填部が見られ、空隙率が 1 % 以上有り、部分放電開始電圧も低かったことから、本発明の有効性が確認された。

【0011】

【表 3】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）とコイルモールドの観察結果

	実施例				比較例		
	10	11	12	13	6	7	8
アルミナ	50	—	—	20	25	—	—
ガラス繊維	—	30	—	10	—	10	—
マイカ	—	—	30	10	—	—	10
固形エポキシ*	15	20	20	20	—	—	—
液状エポキシ	32	47	47	37	72	87	87
硬化剤	3	3	3	3	3	3	3
気泡・未充填部	無し	無し	無し	無し	少い	多い	多い
空隙率	ND	ND	ND	ND	1%	1.5%	2%
部分放電開始電圧	650V	600V	570V	550V	330V	300V	280V

* 固形エポキシ樹脂と37化酸素/エポキシを100/3（重量比）で混合したもの

【0012】

（第4の実施形態）

次に、第3の実施形態と同じく、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気機器のコイルモールドとして使用し、クラック発生について評価した例について説明する。

本試料の形状は第3の実施形態と同じである。本試料は、直径30mmのケイ素鋼板の薄板を5mm厚さに積層したボビン4に、φ1mmの1種ポリエステルエナメル線を外径40mmとなるよう整列巻きしたコイル6を、幅45mm、高さ45mm、厚さ7mmの内容積を持つ図示しない金型に取り付け、表4に示すエポキシ樹脂組成物7にて真空成形し、150℃、8hrにて硬化後に離型したものである。エポキシ樹脂組成物の材料構成は、表2に示した実施例5～9、比較例4、5と同じものとした。

外観を観察し、モールド樹脂のクラックの有無にて評価した。

表4に評価結果を示す。観察の結果、本発明の実施例14～18のエポキシ樹脂組成物にて注形したコイルのモールドにはクラックが見られなかったのに対し、比表面積の大きな無機充填材をそのまま充填した比較例9、10はクラックが発生したことから、本発明の有効性が確認された。

【0013】

【表 4】

10

20

30

40

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）とコイルモールドの観察結果

	実施例					比較例	
	14	15	16	17	18	9	10
ホウ酸アルミ	30	—	30	—	20	10	—
マイカ	—	30	—	30	10	—	10
アルミナ	—	—	10	10	10	—	—
固形エポキシ*	20	20	10	10	20	—	—
液状エポキシ	47	47	47	47	37	87	87
硬化剤	3	3	3	3	3	3	3
クラック	無し	無し	無し	無し	無し	有り	有り

* 固形エポキシ樹脂と3フッ化ポリイソシアネートを100/3（重量比）で混合したもの

10

【0014】

（第5の実施形態）

次に、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気機器のブッシングなどの厚肉注形品に適用した例について説明する。 20

合成粒子1は、粒度分布を1～10mm、中心粒子径を3mmとした。本実施例のエポキシ樹脂組成物と、従来のエポキシ樹脂組成物の組成と粘度を表5に示す。エポキシ樹脂組成物の材料構成は、表1に示した実施例1～4、比較例1～3と同じものとし、粒度分布を1～10mm、中心粒子径を3mmとした。

表5より、微粒子状アルミナを固形エポキシ樹脂にて合成粒子1として充填した実施例19は、同じアルミナをそのまま充填した比較例11の2倍高充填しても粘度は低かった。ガラス繊維を固形エポキシ樹脂にて合成粒子1として充填した実施例20は、同じガラス繊維をそのまま充填した比較例12の3倍高充填しても粘度は低かった。マイカフレークを固形エポキシ樹脂にて合成粒子1として充填した実施例21は、同じマイカをそのまま 30
充填した比較例13の3倍高充填しても粘度は低かった。また、これら3種類の無機充填材を混合して固形エポキシ樹脂にて合成粒子1として充填した実施例22は、粘度上昇が特に大きなガラス繊維やマイカをそのまま充填した比較例12、13よりも粘度は低かった。

以上の結果より、本発明は厚肉注形品に向けても、粘度上昇の大きな無機充填材を、粘度上昇を抑えて充填することが可能となり、つまり、粘度上昇の大きな無機充填材を高充填可能にすることができた。

【0015】

【表5】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と粘度

	実施例				比較例		
	19	20	21	22	11	12	13
アルミナ	50	—	—	20	25	—	—
ガラス繊維	—	30	—	10	—	10	—
マイカ	—	—	30	10	—	—	10
固形エポキシ*	15	20	20	20	—	—	—
液状エポキシ	32	47	47	37	72	87	87
硬化剤	3	3	3	3	3	3	3
粘度(20℃) [Pa・sec]	160	80	110	150	200	800	1500

* 固形エポキシ樹脂と37%化ホウ酸アルミナを100/3（重量比）で混合したもの

10

【0016】

（第6の実施形態）

次に、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気機器のブッシングなどの厚肉注形品を対象にして、エポキシ樹脂組成物の強度で評価した例について説明する。

合成粒子1は、第5の実施形態と同じく粒度分布を1～10mm、中心粒径を3mmとした。

本実施例のエポキシ樹脂組成物と、従来のエポキシ樹脂組成物の組成と粘度と曲げ強度を表6に示す。エポキシ樹脂組成物の材料構成は、表2に示した実施例5～9、比較例4、5と同じものとし、粒度分布を1～10mm、中心粒子径を3mmとしたものである。

表6より、ホウ酸アルミニウムウイスカを固形エポキシ樹脂にて合成粒子として充填した実施例23は、同じホウ酸アルミニウムウイスカをそのまま充填した比較例14の3倍高充填しても粘度は低く、曲げ強度は高かった。マイカフレークを固形エポキシ樹脂にて合成粒子として充填した実施例24は、同じマイカフレークをそのまま充填した比較例15の3倍高充填しても粘度は低く、曲げ強度は高かった。実施例23の固形エポキシ樹脂の一部をアルミナ微粒子にて置き換えた実施例25は、同じホウ酸アルミニウムウイスカをそのまま充填した比較例14の3倍高充填しても粘度は低く、曲げ強度は高かった。実施例24の固形エポキシ樹脂の一部をアルミナ微粒子にて置き換えた実施例26は、同じマイカフレークをそのまま充填した比較例15の3倍高充填しても粘度は低く、曲げ強度は高かった。また、これら3種類の無機充填材を混合して固形エポキシ樹脂にて合成粒子として充填した実施例27は、粘度上昇が特に大きなガラス繊維やマイカをそのまま充填した比較例14、15よりも粘度は低く、曲げ強度は高かった。

30

以上の結果より、本発明により、厚肉注形品に向けた粒度分布においても、粘度上昇の大きな無機充填材を、粘度上昇を抑えて充填することが可能となり、つまり、粘度上昇の大きな無機充填材を高充填可能にすることができた。

40

【0017】

【表6】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と粘度と曲げ強度の関係

	実施例					比較例	
	23	24	25	26	27	14	15
ホウ酸アルミ	30	—	30	—	20	10	—
マイカ	—	30	—	30	10	—	10
アルミナ	—	—	10	10	10	—	—
固形エポキシ*	20	20	10	10	20	—	—
液状エポキシ	47	47	47	47	37	87	87
硬化剤	3	3	3	3	3	3	3
粘度(20℃) [Pa・sec]	90	120	100	130	180	800	1500
曲げ強度[MPa]	150	130	180	160	300	80	70

* 固形エポキシ樹脂と37化酸素エポキシを100/3（重量比）で混合したもの

10

【0018】

20

（第7の実施形態）

次に、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気機器の厚肉部品であるブッシングのモールドとして使用し、気泡や空隙の発生について評価した例について説明する。

本試料の形状を図3に示す。図3は、注形された模擬ブッシングを示す図で、（a）は平面図、（b）は側断面図である。ブッシングを模擬して、直径40mm、長さ60mmの円柱に2箇所のくびれ部分を設けた。本試料は、直径10mmの鉄棒8を図示しない金型に取り付け、表7に示すエポキシ樹脂組成物7にて真空成形し、150℃、8hrにて硬化後に離型したものである。エポキシ樹脂組成物の材料構成は、表5に示した実施例19～22、比較例11～13と同じものとした。

表7に評価結果を示す。外観や断面を観察し、モールド樹脂部分の気泡や未充填部の有無とモールド樹脂部分の空隙率にて評価した。

30

観察の結果、本発明の実施例28～31のエポキシ樹脂組成物にて注形したコイルのモールドには、気泡や未充填部が見られなかったのに対し、比表面積の大きな無機充填材をそのまま充填した比較例16～18は気泡や未充填部が見られ、空隙率が1%以上有ったことから、本発明の有効性が確認された。

【0019】

【表7】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と模擬ブッシングの観察結果

	実施例				比較例		
	28	29	30	31	16	17	18
アルミナ	50	—	—	20	25	—	—
ガラス繊維	—	30	—	10	—	10	—
マイカ	—	—	30	10	—	—	10
固形エポキシ*	15	20	20	20	—	—	—
液状エポキシ	32	47	47	37	72	87	87
硬化剤	3	3	3	3	3	3	3
気泡・未充填部	無し	無し	無し	無し	少い	多い	多い
空隙率	ND	ND	ND	ND	1.1%	1.5%	1.9%

* 固形エポキシ樹脂と37%化ホウ素ノゾールを100/3（重量比）で混合したもの

10

【0020】

（第8の実施形態）

20

次に、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気機器の厚肉部品であるブッシングのモールドとして使用し、クラックの有無にて評価した例について説明する。

本試料の条件は、無機充填材など組成物の条件が異なる以外は、第7の実施形態と同じである。

なお、エポキシ樹脂組成物の材料構成は、表6に示した実施例23～27、比較例14、15と同じものとした。

外観や断面を観察し、モールド樹脂部分のクラックの有無にて評価した。

表8に評価結果を示す。観察の結果、本発明の実施例32～36のエポキシ樹脂組成物にて注形したコイルのモールドにはクラックが見られなかったのに対し、比表面積の大きな無機充填材をそのまま充填した比較例19、20はクラックが見られたことから、本発明の有効性が確認された。

30

【0021】

【表8】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と模擬ブッシングの観察結果

	実施例					比較例	
	32	33	34	35	36	19	20
ホウ酸アルミ	30	—	30	—	20	10	—
マイカ	—	30	—	30	10	—	10
アルミナ	—	—	10	10	10	—	—
固形エポキシ*	20	20	10	10	20	—	—
液状エポキシ	47	47	47	47	37	87	87
硬化剤	3	3	3	3	3	3	3
クラック	無し	無し	無し	無し	無し	有り	有り

* 固形エポキシ樹脂と37%化ホウ素ノゾールを100/3（重量比）で混合したもの

40

50

【0022】

(第9の実施形態)

本実施形態は、熱伝導率が高く、高アスペクト比の無機充填材、つまり熱伝導率を向上させる効果が高い無機充填材を、粘度上昇を抑えることで高充填可能にしたものである。

第1の実施形態と異なる点は無機充填材の一部に形状記憶合金を用いたことと微粒子状無機充填材の粒径だけであり、他の材料は第1の実施形態と同じである。

形状記憶合金：ニッケル／チタン合金（直径0.15mm、平均長さ2mm、変態温度50～70℃）、ニッケル／チタン／銅合金（直径0.2mm、平均長さ2mm、変態温度50～80℃）、ニッケル／チタン／鉄合金（直径0.15mm、平均長さ2mm、変態温度50～70℃）

10

粒子状無機充填材：アルミナ（中心粒径1 μ m）、アルミナ（中心粒径15 μ m）

このエポキシ樹脂組成物の成形時の温度は固形エポキシ樹脂4の融解温度以下とすることで低粘度のまま保ち、硬化温度は固形エポキシ樹脂4の融解温度以上として固形エポキシ樹脂4を融解させ、合成粒子1周囲の液状エポキシ樹脂と均一化するとともに、形状記憶合金3や微粒子状無機充填材2をエポキシ樹脂組成物7内に分散することができる。さらに、硬化温度を形状記憶合金3の変態温度以上とすることで、折り曲げられた形状記憶合金3の形状を復元させて、近傍の形状記憶合金3と接触させることができる。

合成粒子1と液状エポキシ樹脂の混合は、形状記憶合金3の変態温度や固形エポキシ樹脂4の融解温度よりも低い20℃で行い、エポキシ樹脂組成物の加熱硬化温度は形状記憶合金3の変態温度や固形エポキシ樹脂の融解温度よりも高い150℃とした。硬化時間は8

20

h rとした。次に、合成粒子1の粒度分布を1～2mm、中心粒径を1.5mmとした本発明のエポキシ樹脂組成物について、組成と粘度と熱伝導率との関係を表9に示す。また、本発明の比較例として、形状記憶合金単独で充填した場合と、従来の高熱伝導セラミック粒子を充填したエポキシ樹脂組成物について、組成と粘度と熱伝導率との関係を表9に示す。

表9より、ニッケル／チタン合金と固形エポキシ樹脂との合成粒子を充填した実施例37は、同じニッケル／チタン合金をそのまま充填した比較例21の3倍高充填しても粘度は低く、熱伝導率は比較例21よりも1桁高く、アルミナ粒子を高充填した比較例24よりも高かった。ニッケル／チタン／銅合金と固形エポキシ樹脂との合成粒子を充填した実施例38は、同じニッケル／チタン／銅合金をそのまま充填した比較例22の3倍高充填し

30

ても粘度は低く、熱伝導率は比較例22よりも1桁高く、アルミナ粒子を高充填した比較例24よりも高かった。ニッケル／チタン／鉄合金と固形エポキシ樹脂との合成粒子を充填した実施例39は、同じニッケル／チタン／鉄合金をそのまま充填した比較例23の3倍高充填しても粘度は低く、熱伝導率は比較例23よりも1桁高く、アルミナ粒子を高充填した比較例24よりも高かった。また、これら3種類の無機充填材を混合して固形エポキシ樹脂4にて合成粒子として充填した実施例40は、実施例21、22、23と同等の粘度と熱伝導率が得られた。実施例40の固形エポキシ樹脂の一部をアルミナ微粒子にて置き換えた実施例41は、実施例37、38、39、40よりも粘度は若干上昇したが、熱伝導率は高くなった。以上の結果より、本発明により粘度上昇の大きな線状の形状記憶合金無機充填材を、粘度

40

【0023】

【表9】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と粘度と熱伝導率の関係

	実施例					比較例			
	37	38	39	40	41	21	22	23	24
Ni/Ti	50	—	—	15	15	10	—	—	—
Ni/Ti/銅	—	50	—	15	15	—	10	—	—
Ni/Ti/鉄	—	—	50	15	15	—	—	10	—
アルミナ（微細）	—	—	—	—	10	—	—	—	—
アルミナ（ ）	—	—	—	—	—	—	—	—	70
固形エポキシ樹脂*	10	10	10	15	5	—	—	—	—
液状エポキシ樹脂	38	38	38	38	38	77	77	77	29
硬化剤	2	2	2	2	2	3	3	3	1
粘度(20℃) [Pa・sec]	100	130	110	150	150	600	550	650	150
熱伝導率[W/m・K]	4.0	4.5	3.5	3.0	5.0	0.1	0.2	0.1	1.2

* 固形エポキシ樹脂と37化め素/アクリンを100/3（重量比）で混合したもの

【0024】

（第10の実施形態）

次に、箔状の形状記憶合金3を充填した合成粒子1を用いた例について説明する。箔状の形状記憶合金の製造方法について述べる。第9の実施形態にて用いた3種類の線状の形状記憶合金を、約0.3mmの長さに切断し、500℃の加熱下でヒートプレスして厚さ100μm以下の箔状の形状を記憶させた。

合成粒子1の製造方法ならびに、液状エポキシ樹脂との混合、硬化方法は第1の実施形態と同じである。

次に、合成粒子1の粒度分布を1～2mm、中心粒径を1.5mmとした本発明のエポキシ樹脂組成物について、組成と粘度と熱伝導率との関係を表10に示す。材料の組成は表9の実施例と同じであり、形状記憶合金無機充填材3の形状のみが異なる。また、本発明の比較例は、第9の実施形態と同じであり表9に示す。

表10より、ニッケル／チタン合金と固形エポキシ樹脂との合成粒子を充填した実施例42は、同じニッケル／チタン合金をそのまま充填した比較例21の3倍高充填しても粘度は低く、熱伝導率は比較例21よりも1桁高く、アルミナ粒子を高充填した比較例24よりも高かった。ニッケル／チタン／銅合金と固形エポキシ樹脂との合成粒子を充填した実施例43は、同じニッケル／チタン／銅合金をそのまま充填した比較例22の3倍高充填しても粘度は低く、熱伝導率は比較例22よりも1桁高く、アルミナ粒子を高充填した比較例24よりも高かった。ニッケル／チタン／鉄合金と固形エポキシ樹脂との合成粒子を充填した実施例44は、同じニッケル／チタン／鉄合金をそのまま充填した比較例23の3倍高充填しても粘度は低く、熱伝導率は比較例23よりも1桁高く、アルミナ粒子を高充填した比較例24よりも高かった。また、これら3種類の無機充填材を混合して固形エポキシ樹脂4にて合成粒子として充填した実施例45は、実施例42、43、44と同等の粘度と熱伝導率が得られた。実施例45の固形エポキシ樹脂の一部をアルミナ微粒子にて置き換えた実施例46は、実施例37、38、39、40よりも粘度は若干上昇したが、熱伝導率は高くなった。以上の結果より、本発明により粘度上昇の大きな箔状無機充填材を、粘度上昇を抑えて高充填することが可能となり、エポキシ樹脂組成物の熱伝導率を高めることができた。

【0025】

【表10】

10

20

30

40

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と粘度と熱伝導率の関係

	実施例				
	42	43	44	45	46
Ni/Ti	50	—	—	15	15
Ni/Ti/銅	—	50	—	15	15
Ni/Ti/鉄	—	—	50	15	15
アルミナ（微細）	—	—	—	—	10
固形エポキシ樹脂*	10	10	10	15	5
液状エポキシ樹脂	38	38	38	38	38
硬化剤	2	2	2	2	2
粘度(20℃) [Pa・sec]	120	140	130	160	170
熱伝導率[W/m・K]	4.4	4.8	3.6	3.2	5.3

* 固形エポキシ樹脂と37％化ホ素エノアルシを100/3（重量比）で混合したもの

10

20

30

【0026】

（第11の実施形態）

次に、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気機器のコイルモールドとして使用した例について説明する。本試料の形状を図4に示す。図4は、注形されたコイルを示す図で、（a）は平面図、（b）は側断面図である。本試料は、直径38mm、のケイ素銅板の薄板を5mm厚さに積層したボビン5に熱電対9を取り付け、φ2mmの絶縁処理したニクロム線を外径40mmとなるよう整列巻きしたコイル6を、幅45mm、高さ45mm、厚さ15mmの内容積を持つ図示しない金型に取り付け、表9に示すエポキシ樹脂組成物7にて真空成形し、150℃、8hrにて硬化後に離型したものである。エポキシ樹脂組成物7の材料構成は、表9に示した実施例37から41、比較例21から24と同じものとした。

評価は、25℃の水中にて、コイル6に図示しない抵抗と交流電源を接続し、100V、60Hzの交流電圧を印加して温度上昇の経時変化を測定することで行った。表11に評価結果を示す。温度変化が飽和した時の温度ライズにて評価した。本発明の実施例37から41のエポキシ樹脂組成物にて注形したコイルは温度ライズが数度であったのに対し、比較例のエポキシ樹脂組成物にて注形したコイルの温度ライズは10℃以上あったことから、本発明の有効性が確認された。

【0027】

【表11】

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）とコイルの温度ライズの関係

	実施例					比較例			
	37	38	39	40	41	21	22	23	24
Ni/Ti	50	—	—	—	15	10	—	—	—
Ni/Ti/銅	—	10	—	—	15	—	10	—	—
Ni/Ti/鉄	—	—	10	—	15	—	—	10	—
アルミナ（微細）	—	—	—	70	10	—	—	—	70
固形エポキシ樹脂*	10	10	10	15	5	—	—	—	—
液状エポキシ樹脂	38	38	38	38	38	77	77	77	29
硬化剤	2	2	2	2	2	3	3	3	1
温度ライズ [℃]	4	4	4	5	3	18	20	18	10

* 固形エポキシ樹脂と3-フェニルフェノール/エポキシを100/3（重量比）で混合したもの

10

【0028】

ちなみに形状記憶合金は、樹脂温度を低温に管理した場合はニッケル／チタン／コバルト合金（変態温度0～-80℃）でも良い。また、本実施例での合成粒子の直径は1mm以上としたが、形状記憶合金のウイスカや鱗片等を用いれば、合成粒子の直径は100μm程度の粒子径でも良く、また厚肉注形品の場合は数mm～10mmとしても良いことは言うまでも無い。

20

【0029】

（第12の実施形態）

本実施形態は、厚肉部分をモールドする樹脂に比重の大きな無機粒子を充填する際に、成形時は粘度上昇を抑えて作業性を良好にし、加熱硬化時は、樹脂に比表面積が大きい無機充填材、つまり粘度を上昇させる効果が高い無機充填材を分散させて増粘させ、無機粒子の沈降を防止したものである。

第1の実施形態と異なる点は無機充填材の一部だけであり、他の材料は第1の実施形態と同じである。

30

合成粒子1の径は粘度上昇が小さい5μm以上であり、電気機器のモールド樹脂として用いるためには200μm以下が良い。

合成粒子中の比表面積が大きな無機充填材：シリカ（アエロジル、粒径0.007μm）、アルミナ（研磨用、平均粒径0.05μm）の微粒子

液状エポキシ樹脂に充填する無機粒子：アルミナ（球状、平均粒径40μm、比重3.9）、溶融シリカ（球状、平均粒径15μm、比重2.7）

図5は、合成粒子1を充填したエポキシ樹脂組成物を室温より加熱したときの温度と粘度の関係を示す特性図である。合成粒子1は粒子径が5μm以上と粗大であり比表面積が小さいため、固形エポキシ樹脂4の融解温度以下の液状エポキシ樹脂に充填したとき、つまり固形エポキシ樹脂4が融解していないときの粘度上昇は、従来の無機粒子を充填した場合と同様に低く、成形作業性を損なうことは無い。このエポキシ樹脂組成物の成形時の温度は固形エポキシ樹脂4の融解温度以下とすることで低粘度のまま保つ。硬化温度は合成粒子1の固形エポキシ樹脂4の融解温度以上として融解させ、合成粒子周囲の液状エポキシ樹脂と均一化するとともに、比表面積が大きい微粒子や箔状、線状の無機充填材をエポキシ樹脂組成物内に分散させ、粘度を高めることができる。

40

合成粒子1の製造方法は第1の実施形態と同様である。

次に、組成と粘度と無機物沈降の評価結果を表12に示す。粘度は成形温度である40℃と硬化温度である100℃を測定した。また評価は、10mmの辺を持つ立方体を作製する図示しない金型に成形・硬化させた硬化物を、成形時の置き方で上下2分割に切り出し

50

、500℃、1hrでの灼熱残渣を秤量して、硬化物中の無機物含有率を測定した。

本実施例のエポキシ樹脂組成物は、コイルモールドに向けた粒度分布を想定し、合成粒子1の粒度分布を5～100μm、中心粒径を30μmとした。比較例として、従来のエポキシ樹脂組成物の組成も加えた。

表12より、本発明の実施例42～44のエポキシ樹脂組成物は、成形温度である40℃での粘度は低いが硬化温度である100℃での粘度は40℃よりも高くなり、また、硬化物の部位による無機物含有率がほとんど変わらなかった。これに対し、無機粒子をそのまま充填した比較例25、26は、100℃での粘度は40℃よりもきわめて低くなり、硬化物は無機粒子の沈降が顕著に見られたことから、本発明の有効性が確認された。

【0030】

【表12】

エポキシ樹脂組成物の材料構成(重量比)と粘度と灼熱残渣量

		実施例			比較例	
		42	43	44	25	26
アルミナ		40	—	20	50	—
シリカ		—	40	20	—	50
微粒子状アルミナ		10	—	5	—	—
微粒子状シリカ		—	10	5	—	—
固形エポキシ*		10	10	10	—	—
液状エポキシ		38	38	38	48	48
硬化剤		2	2	2	2	2
粘度 [Pa・sec]	40℃	100	120	110	90	80
	100℃	120	160	140	5	5
灼熱残渣 [wt%]	上	60	53	56	10	20
	下	40	47	44	90	80

* 固形エポキシ樹脂と37%化酸素エポキシを100/3(重量比)で混合したもの

【0031】

(第13の実施形態)

本実施形態は、高アスペクト比の無機充填材を合成粒子に充填したものである。

第12の実施形態と異なる点は粒子の一部だけであり、他の条件は第12の実施形態と同じである。

合成粒子1中の比表面積が大きな線状や箔状の無機充填材3として、微粒子状無機充填材2に代えてホウ酸アルミニウムウイスカ(直径0.5～1μm、長さ10～30μm)、合成マイカフレーク(平均径1～5μm、アスペクト比20～30)を用いた。

組成と粘度と無機物沈降の評価結果を表13に示す。表13より、本発明の実施例45～47のエポキシ樹脂組成物は、成形温度である40℃での粘度は低いが硬化温度である100℃での粘度は40℃よりも高くなり、硬化物の部位による無機物含有率がほとんど変わらなかった。これに対し、表12に示した無機粒子をそのまま充填した比較例25、26の硬化物は、100℃での粘度は40℃よりもきわめて低くなり、硬化物は無機粒子の沈降が顕著に見られたことから、本発明の有効性が確認された。

【0032】

【表13】

10

20

30

40

エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と粘度と灼熱残渣量

		実施例 4 5	実施例 4 6	実施例 4 7
アルミナ		4 0	—	2 0
シリカ		—	4 0	2 0
ホウ酸アルミ		1 0	—	5
合成マイカ		—	1 0	5
固形エポキシ*		1 0	1 0	1 0
液状エポキシ		3 8	3 8	3 8
硬化剤		2	2	2
粘度 [Pa・sec]	40℃	1 0 0	1 2 0	1 1 0
	100℃	1 3 0	1 5 0	1 4 0
灼熱残渣 [wt%]	上	5 7	5 2	5 4
	下	4 3	4 8	4 6

* 固形エポキシ樹脂と3フッ化ホウ素/エポキシを100/3（重量比）で混合したもの

10

20

【0033】

（第14の実施形態）

次に、本発明のエポキシ樹脂組成物を電気機器の厚肉部品であるブッシングのモールドとして使用した例について説明する。

本試料の形状を図3に示す。本試料は、直径10mmの鉄棒8を図示しない金型に取り付け、表14に示すエポキシ樹脂組成物7にて真空成形し、150℃、8hrにて硬化後に離型したものである。エポキシ樹脂組成物の材料構成は表12、13に示した実施例43、43、45、46、比較例25、26と同じものとした。

表14に評価結果を示す。成形・硬化させた模擬ブッシングのエポキシ樹脂組成物7を、成形時の置き方で上から10mm厚の部分と下から10mm厚の部分を取り出し、500℃、1hrでの灼熱残渣を秤量して硬化物中の無機物含有率を測定した。表3より、本発明の実施例43～46のエポキシ樹脂組成物にて成形したブッシングのモールドは、部位による無機物含有率がほとんど変わらなかったのに対し、粒子をそのまま充填した比較例27、28は無機粒子の沈降が顕著に見られたことから、本発明の有効性が確認された。

30

【0034】

【表14】

模擬ブッシング用エポキシ樹脂組成物の材料構成（重量比）と灼熱残渣量

		実施例				比較例	
		48	49	50	51	27	28
アルミナ		40	—	40	—	50	—
シリカ		—	40	—	40	—	50
微粒子状アルミナ		10	—	—	—	—	—
微粒子状シリカ		—	10	—	—	—	—
ホウ酸アルミ		—	—	10	—	—	—
合成マイカ		—	—	—	10	—	—
固形エポキシ*		10	10	10	10	—	—
液状エポキシ		38	38	38	38	48	48
硬化剤		2	2	2	2	2	2
灼熱残渣 [wt%]	上	59	52	53	51	13	26
	下	41	48	47	49	80	70

* 固形エポキシ樹脂と37%化ケイ素/エポキシを100/3（重量比）で混合したもの

10

20

30

40

50

【0035】

ちなみに、無機充填材と固形エポキシ樹脂からなる粒子の製造は、未硬化または半硬化の固形エポキシ樹脂を有機溶剤等で溶解させ無機充填材と混合した後、溶剤等を除去して固形化させ粉碎したり、スプレードライや超臨界二酸化炭素中での混合にて造粒しても良い。また、その無機充填材はアルミナやガラス繊維やマイカに限らず、粒子状ではアルミナ、シリカ、炭化ケイ素、窒化ケイ素、窒化アルミニウム、ホウ酸マグネシウム、アルミナ、カーボン、グラファイト、ガラス、各種金属、各種熱可塑性プラスチック、各種ゴムでも良く、線状ではホウ酸アルミニウム、炭化ケイ素、窒化ケイ素、チタン酸カリウム、ホウ酸マグネシウム、アルミナ、カーボン、グラファイト、チラノ繊維、アラミド繊維などの繊維やウイスカ、箔状ではモンモリロナイト、酸化チタン、窒化アルミニウム、金属箔などでも良い。

【0036】

【発明の効果】

以上述べたように、本発明によればつぎの効果がある。

（１）本発明のエポキシ樹脂組成物は、無機充填材と固形エポキシ樹脂とからなり、粒子径が $5\mu\text{m}\sim 10\text{mm}$ 、好ましくは $10\mu\text{m}\sim 200\mu\text{m}$ の合成粒子を、エポキシ樹脂に充填したもので、硬化温度は、固形エポキシ樹脂の融解温度以上の温度にて硬化させたものである。

（２）また、無機充填材は、 $2\mu\text{m}$ 以下の粒子径からなる微粒子、または、粒子からなるもので、無機充填材は、 $1\mu\text{m}$ 以上の長さからなる線状または $10\mu\text{m}$ 以下の厚さからなる箔状をしたものである。

したがって、粘度上昇を抑えて無機充填材を高充填でき、空隙率が低く、高強度、高靱性・高熱伝導率のエポキシ樹脂組成物が得られる。

さらに

（３）無機充填材を形状記憶合金とし、固形エポキシ樹脂は未硬化または半硬化の状態のものを、形状記憶合金の変態温度以上かつ固形エポキシ樹脂の融解温度以上の温度にて硬化させたものである。

（４）また、形状記憶合金は $100\mu\text{m}$ 以上の長さからなる線状またはそれを折り曲げた

形状、および／または、 $100\mu\text{m}$ 以下の厚さからなる箔状またはそれを折りたたんだ形状としたものとからなるものである。

したがって、充填率に対する熱伝導率の向上が大きい無機充填材を、粘度上昇を抑えて無機充填材を高充填することができ、また、無機充填材が相互に接触するため、高熱伝導率のエポキシ樹脂組成物を得ることができる。

(5) 合成粒子と無機粒子とをエポキシ樹脂に充填し、固形エポキシ樹脂は未硬化または半硬化の状態のものを、固形エポキシ樹脂の融解温度以上の温度にて硬化させたものである。

以上の構成により、成形作業性が良く、厚肉部においても無機粒子の沈降を小さくすることができ、無機充填材の沈降が無く均一に分散した良好な厚肉の硬化物を得ることができる。 10

(6) また、本発明のエポキシ樹脂組成物をモールド材に用いたコイルまたはブッシングまたは端子などの電気機器モールド材として電気機器に用いたものである。

以上の構成により、このエポキシ樹脂組成物を用いた高性能な電気機器を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明のエポキシ樹脂組成物に混合する粒子の断面を示す模式図である。

【図2】本発明のエポキシ樹脂組成物にて注形されたコイルを示す図で、(a)は平面図、(b)は側断面図である。

【図3】本発明のエポキシ樹脂組成物にて注形された模擬ブッシングを示す図で、(a) 20は平面図、(b)は側断面図である。

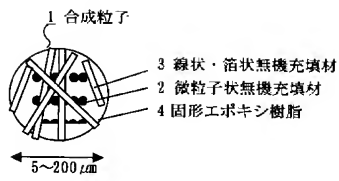
【図4】本発明のエポキシ樹脂組成物にて注形されたコイルを示す図で、(a)は平面図、(b)は側断面図である。

【図5】本発明のエポキシ樹脂組成物の温度と粘度との関係を示す特性図である。

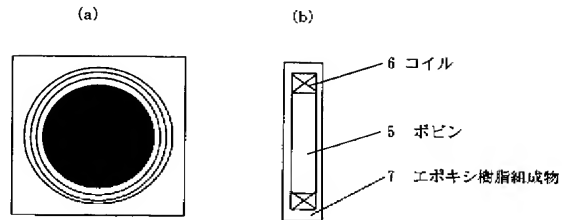
【符号の説明】

- 1 合成粒子
- 2 微粒子状の無機充填材
- 3 線状や箔状の無機充填材
- 4 固形エポキシ樹脂
- 5 ボビン
- 6 コイル
- 7 エポキシ樹脂組成物
- 8 鉄棒
- 9 熱電対

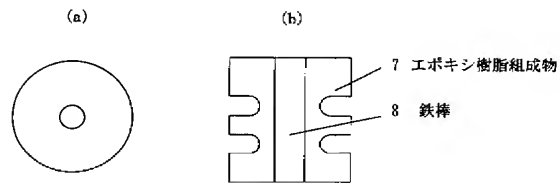
【図 1】



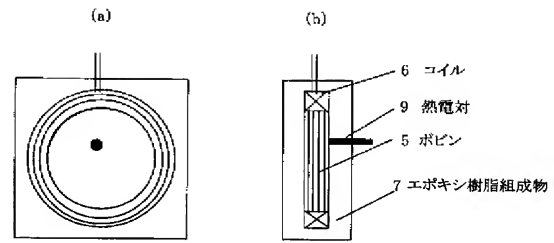
【図 2】



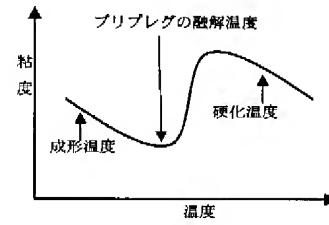
【図 3】



【図 4】



【図 5】



DERWENT-ACC-NO: 2004-663939**DERWENT-WEEK:** 200465*COPYRIGHT 2008 DERWENT INFORMATION LTD*

TITLE: Epoxy resin composition for electric equipments and other molded articles, consists of inorganic filler containing synthetic particle of preset size, and solid epoxy resin of preset particle diameter

INVENTOR: HAMAO S**PATENT-ASSIGNEE:** YASKAWA ELECTRIC CORP[YASW]**PRIORITY-DATA:** 2003JP-039701 (February 18, 2003)**PATENT-FAMILY:**

PUB-NO	PUB-DATE	LANGUAGE
JP 2004250482 A	September 9, 2004	JA

APPLICATION-DATA:

PUB-NO	APPL-DESCRIPTOR	APPL-NO	APPL-DATE
JP2004250482A	N/A	2003JP-039701	February 18, 2003

INT-CL-CURRENT:

TYPE	IPC DATE
CIPP	C08L63/00 20060101
CIPS	C08K3/00 20060101

ABSTRACTED-PUB-NO: JP 2004250482 A

BASIC-ABSTRACT:

NOVELTY - The epoxy resin composition consists of inorganic filler and a solid epoxy resin (4) of particle diameter 5 μ m to 10 mm. The epoxy resin contains synthetic particle (1) of size 10-200 μ m.

USE - For molded articles such as bushing, insulator, coil and electric equipments (all claimed).

ADVANTAGE - The epoxy resin composition has high filling factor, toughness, heat conductivity, workability and strength. The inorganic filler is uniformly dispersed in the resin composition. Sedimentation of the inorganic filler is prevented.

DESCRIPTION OF DRAWING(S) - The figure shows the cross-section of the synthetic particle added to the epoxy resin composition. (Drawing includes non-English language text).

synthetic particle (1)

fine particulate inorganic filler (2)

rod or foil-shaped inorganic filler (3)

solid epoxy resin (4)

EQUIVALENT-ABSTRACTS:

POLYMERS

Preferred Composition: A non-hardened or semi-hardened epoxy resin is poured into a metallic mold at a

temperature less than the melting point of the epoxy resin. Curing is performed at a temperature more than the melting temperature of the epoxy resin, to obtain solid epoxy resin.

INORGANIC CHEMISTRY

Preferred Filler: The inorganic filler is in the form of fine particles of diameter 1 nm to 2 μm , and/or in the form of foil or rod of length 1 μm or more and thickness 10 μm or less. The inorganic filler consists of alumina, aluminum borate, silica, silicon carbide, silicon nitride, aluminum nitride, potassium titanate, magnesium borate, carbon, graphite, aramid fiber, mica, montmorillonite, titanium oxide, glass, metal and/or thermoplastic rubber. The inorganic filler is made into a shape memory alloy. Curing of the resin composition is performed at a temperature more than the transformation temperature of the shape memory alloy. The shape memory alloy has a length of 100 μm or more and/or a thickness of 100 μm or less. The shape memory alloy consists of nickel-titanium alloy, nickel-titanium-copper alloy, nickel-titanium-cobalt alloy and/or nickel-titanium-iron alloy. The resin composition contains inorganic particle consisting of alumina, silica, silicon carbide, silicon nitride, aluminum nitride, potassium titanate, magnesium borate, carbon, montmorillonite, titanium oxide, glass and/or metal.

Alumina (in weight parts) (50) of center grain diameter 1 μm , bisphenol A (15) of epoxy equivalent 450 and melting point 70 $^{\circ}\text{C}$, bisphenol A (32) of epoxy equivalent 190 and boron trifluoride monomethyl amine (3) were blended, to obtain an epoxy resin composition. The obtained epoxy resin composition has excellent heat conductivity and toughness.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.1/5

TITLE-TERMS: EPOXY RESIN COMPOSITION ELECTRIC MOULD
ARTICLE CONSIST INORGANIC FILL CONTAIN
SYNTHETIC PARTICLE PRESET SIZE SOLID
DIAMETER

DERWENT-CLASS: A21 A85 V04 X12

CPI-CODES: A05-A01E2; A12-E01;

EPI-CODES: V04-X01B;

ENHANCED-POLYMER-INDEXING: Polymer Index [1.1] 2004 ;
P0464*R D01 D22 D42 F47;
M9999 M2073; L9999 L2391;
L9999 L2073; S9999 S1456*R;
S9999 S1434;

Polymer Index [1.2] 2004 ;
ND04; K9449; Q9999 Q7330*R;
B9999 B5209 B5185 B4740;
N9999 N5743; N9999 N6440*R;
B9999 B5607 B5572; Q9999
Q7896 Q7885; Q9999 Q7374*R
Q7330; B9999 B4193 B4091
B3838 B3747; B9999 B5527
B5505; B9999 B3623 B3554;
B9999 B4091*R B3838 B3747;

Polymer Index [1.3] 2004 ;
D00 B* 3A Al O* 6A Mg 2A;
D00 F20 Al 3A O* 6A R01544
92; D00 F20 O* 6A Si 4A
R01694 107016; D00 C* 4A Si
R01247 129418; D00 N* 5A Si
4A R03124 129760; D00 K* 1A
O* 6A Ti 4B Tr R05311
129604; D00 D09 C* 4A
R05085 2211; D00 D09 C* 4A
R01778 200703; D00 F80 Al
3A Si 4A O* 6A R16529
101253; D00 F20 Ti 4B Tr O*

6A R01966 686; D00 Al 3A N*
5A; G3010 D00 F80 Al 3A Si
4A O* 6A; G2880 D00 Si 4A;
D00 D09 Ni 8B Tr Ti 4B Cu
1B Co Fe; A999 A237; S9999
S1456*R; B9999 B5209 B5185
B4740;

Polymer Index [2.1] 2004 ;
H0135 H0124; A999 A237;
A999 A782; S9999 S1456*R;

Polymer Index [2.2] 2004 ;
P0737*R P0635 H0293 F70 D01
D18; S9999 S1070*R; A999
A237; A999 A782;

Polymer Index [2.3] 2004 ;
B9999 B5209 B5185 B4740;

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: 2004-237231

Non-CPI Secondary Accession Numbers: 2004-525686